

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-115377

(43)Date of publication of application : 18.04.2003

(51)Int.Cl.

H05B 33/02
G09F 9/00
G09F 9/30
H05B 33/12
H05B 33/14
H05B 33/24
H05B 33/26

(21)Application number : 2001-307516

(71)Applicant : NEC CORP

(22)Date of filing : 03.10.2001

(72)Inventor : AZUMAGUCHI TATSU
ISHIKAWA HITOSHI
ODA ATSUSHI

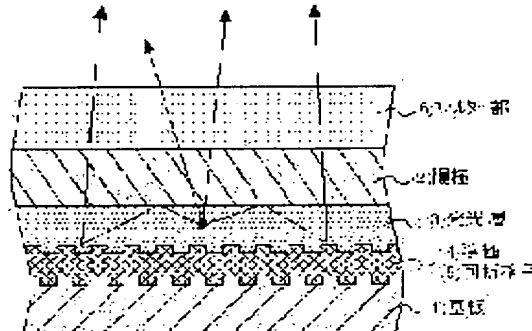
BEST AVAILABLE COPY

(54) LIGHT EMITTING ELEMENT, ITS MANUFACTURING METHOD, AND DISPLAY EQUIPMENT USING THIS

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light emitting element, which is highly efficient and has no optical leak, even if it forms multi colors, displays equipment using this, and its manufacturing method.

SOLUTION: The light emitting element has an organic electroluminescence element, a diffraction grating or a zone plate, and a filter part. And, the emitted light is controlled into a predetermined angle range by penetrating or reflecting of the light, which is emitted from the light emitting layer, at the diffraction grating or the zone plate, which has been formed with a predetermined grating space. Further, by passing through the filter part, the light emitting element is created, from which the light that has different color tone or chromaticity from the light emitted from a light emitting layer, is taken out.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

03.10.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-115377

(P2003-115377A)

(43)公開日 平成15年4月18日(2003.4.18)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	キーワード(参考)
H 0 5 B 33/02		H 0 5 B 33/02	3 K 0 0 7
G 0 9 F 9/00	3 1 3	G 0 9 F 9/00	3 1 3 5 C 0 9 4
	3 3 8		3 3 8 5 G 4 3 5
9/30	3 4 9	9/30	3 4 9 Z
	3 6 5		3 6 5 Z
審査請求 有 請求項の数12 O L (全 14 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願2001-307516(P2001-307516)

(22)出願日 平成13年10月3日(2001.10.3)

(71)出願人 000004237

日本電気株式会社

東京都港区芝五丁目7番1号

(72)発明者 東口 達

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(73)発明者 石川 仁志

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(74)代理人 100114672

弁理士 宮本 恵司

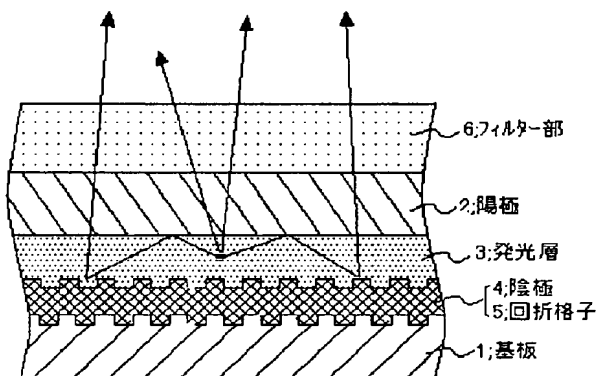
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 発光素子、その製造方法およびこれを用いた表示装置

(57)【要約】

【課題】高効率で多色化しても光もれのない発光素子、これを用いた表示装置およびこれらの製造方法を提供する。

【解決手段】有機エレクトロルミネッセンス素子と、回折格子あるいはゾーンプレートと、フィルター部とを有し、発光層から発した光が所定の格子間隔で形成された回折格子あるいはゾーンプレートを透過又は反射することで出射光が所定の角度範囲に制御され、フィルター部を通過することで発光層で発した光とは色調若しくは色度の異なる光として取り出される発光素子を作成する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】陽極と陰極間に発光層を含む一層又は複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子内あるいはこれに隣接して設けられた回折格子あるいはゾーンプレートと、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と前記回折格子あるいはゾーンプレートの外部に設けられたフィルター部からなり、発光層から発した光がフィルター部を通過することで発光層で発した光とは色調若しくは色度の異なる光として取り出される事を特徴とする発光素子。

【請求項2】同一画素を形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極若しくは陰極のうち、一方の電極が可視光域で透明であり光を取り出すことができ、もう一方の電極が可視光を反射する電極であり、この反射電極に回折格子あるいはゾーンプレートが形成されている請求項1記載の発光素子。

【請求項3】同一画素を形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極若しくは陰極のうち、一方の電極が可視光域で透明であり光を取り出すことができ、もう一方の電極が可視光を反射する電極であり、透明電極側に回折格子あるいはゾーンプレートが形成されている請求項1記載の発光素子。

【請求項4】前記回折格子あるいはゾーンプレートの全体が光透過性を有することを特徴とする請求項3記載の発光素子。

【請求項5】回折格子が二次元周期を持つことを特徴とする請求項1ないし4記載の発光素子。

【請求項6】光透過性基板の一方の面に電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートが形成され、他方の面にフィルター部が配置されることを特徴とする請求項1ないし5記載の発光素子。

【請求項7】電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートが基板上に形成され、該基板に対して電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートと同じ側でこれらに直接接しない位置にフィルター部が配置されることを特徴とする請求項1ないし5記載の発光素子。

【請求項8】フィルター部が前記発光層から発した光を吸収し、吸収した光とは異なる波長の光を発する蛍光物質あるいはりん光物質を含むことを特徴とする請求項1ないし7記載の発光素子。

【請求項9】フィルター部の光射出面に光を散乱させる機能を有する事を特徴とする請求項1ないし8記載の発光素子。

【請求項10】請求項1ないし9記載の発光素子を複数並置したことを特徴とする表示装置。

【請求項11】前記有機エレクトロルミネッセンス素子および前記回折格子あるいはゾーンプレートと、前記フィルター部を個別に作成した後、互いを貼り合わせるこ

とを特徴とする請求項1ないし9記載の発光素子の製造方法。

【請求項12】前記有機エレクトロルミネッセンス素子および前記回折格子あるいはゾーンプレートと、前記フィルター部を個別に作成した後、互いを貼り合わせることを特徴とする請求項10記載の表示装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、詳しくは青色から赤色まで広い波長領域の発光色を有する有機エレクトロルミネッセンス（以下、有機ELと略す）素子とそれを用いた表示装置に関する。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告（C. W. Tang, S. A. Van Slyke、アプライドフィジックスレターズ（Applied Physics Letters）、51巻、913頁、1987年 など）がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機エレクトロルミネッセンス素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス（8-キノリノール）アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じこめることなどが挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送性発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等が良く知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、有機エレクトロルミネッセンス素子に於いては、キャリア再結合の際にスピン統計の依存性より一重項生成の確率に制限があり、したがって発光確率に上限が生じる。この上限の値は凡そ25%と知られている。更に有機エレクトロルミネッセンス素子に於いては、その発光体の屈折率の影響のため、図1に示すように、臨界角以上の出射角の光は全反射を起こし外部に取り出すことができない。このため、発光体の屈折率が1.6とすると発光量全体の20%程度しか有効に利用できず、エネルギーの変換効率の限界としては一重項生成確率を併せ全体で5%程

度と低効率とならざるをえない(筒井哲夫「有機エレクトロルミネッセンスの現状と動向」、月刊ディスプレイ、vol. 1、No. 3、p11、1995年9月)。発光確率に強い制限の生じる有機エレクトロルミネッセンス素子に於いては、光の取り出し効率は致命的ともいえる効率の低下を招くことになる。

【0004】この光の取り出し効率を向上させる手法としては、従来無機エレクトロルミネッセンス素子などの、同等な構造を持つ発光素子に於いて検討されてきた。例えば、基板に集光性を持たせることで効率を向上させる方法(特開昭63-314795号公報)や、素子の側面等に反射面を形成する方法(特開平1-220394号公報)は、発光面積の大きな素子に対しては有効であるが、ドットマトリクスディスプレイ等の画素面積の微小な素子に於いては、集光性を持たせるレンズや側面の反射面等の形成加工が困難である。更に有機エレクトロルミネッセンス素子に於いては発光層の膜厚が数 μm 以下となるためテーパ状の加工を施し素子側面に反射鏡を形成することは現在の微細加工の技術では困難であり、大幅なコストアップをもたらす。

【0005】また、基板ガラスと発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法(特開昭62-172691号公報)もあるが、この方法は前方への光の取り出し効率の改善の効果はあるが全反射を防ぐことはできない。したがって屈折率の大きな無機エレクトロルミネッセンスに対しては有効であっても、比較的低屈折率の発光体である有機エレクトロルミネッセンス素子に対しては大きな改善効果を生まない。

【0006】一方、有機EL素子をディスプレイ用途に応用する場合に、その発光色の多色化が強く求められる。多色化の手法としては次の3つの手法が考えられる。

【0007】第1の方法は、各発光色毎に異なる発光材料を用いる或いは蛍光色素をドーピングして有機EL素子を作製するものである。第2の方法は、必要な発光色の波長成分を含む発光が得られる有機EL素子の発光から、カラーフィルターにより不必要な波長成分を取り除き、必要な発光色の光を得る方法(カラーフィルター法)である。第3の方法は、有機EL素子の発光を吸収し励起され、必要とする発光色の光を発する蛍光色素を含むフィルターを通して光を取り出す方法(光変換法)である。

【0008】自然画などの表示に用いられるフルカラーディスプレイは、通常赤(R)、緑(G)、青(B)の各色の画素を配列して構成される。第1の方法でRGB各色の画素を形成した例は特開平5-275172号公報、特開平5-258859号公報、特開平2-258860号公報などに開示されているが、これらはRGB各素子をパターンニングして形成する必要があり、工程が非常に複雑なものになるため、量産性において不利である。

【0009】これに対し、第2、第3の方式はパターンニングされたカラーフィルターあるいは光変換層を用いれば、有機EL素子のパターンニングは必要無いことから、容易にフルカラーディスプレイを実現できる。フルカラーディスプレイを第2の方式で実現した例としては、特開平7-220871号公報に白色発光層を有する有機EL素子にカラーフィルターを組み合わせた例が開示されている。また第3の方式で実現した例は、特開平3-152897号公報あるいは特開平11-121164号公報にて開示されているものが挙げられる。

【0010】しかし、第2、第3の方法を用いて、カラーフィルターあるいは光変換層に隣接あるいは極めて近接した位置に有機EL素子が配置される場合、カラーフィルターあるいは光変換層を作製するプロセスが数回のフォトリソグラフィ工程を必要とするなど極めて複雑なプロセスとなる上に、形成後の表面には凹凸が形成されてしまい平坦化層による平坦化を行ってもその影響は消しきれず、画素ショートなどの問題が発生する。またカラーフィルターあるいは光変換層から放出される化合物の影響を避けるために保護層を挟み込む必要があるなど、有機EL素子の性能面、製造コスト面における問題があり量産性を有するものではなかった。

【0011】これを解決する方法としてカラーフィルターあるいは光変換層を基板の反対面など有機EL素子から離れた位置に配置する方法があるが、従来の技術では有機EL素子から発せられた光が隣接する画素領域へ到達するために、本来非発光画素であるはずの画素から光が観測される光もれの問題が生じていた。この光もれを解決するために、基板と有機EL素子の間にブラックマスクと光拡散層を設ける手法が検討されているが(特開平11-8070号公報)、この場合、ブラックマスクによって光の一部が吸収されてしまうため、光取り出し効率がさらに低下するという問題点がある。

【0012】したがって簡便なプロセスで高い量産性を有し、光もれ防止と高い光の取り出し効率を実現した有機EL素子を用いた発光素子および表示装置を得る方法は未だ得られておらず、この方法の開拓が強く求められていた。

【0013】本発明の目的は、高精細なパターンニングが簡便な工程で実現可能でありかつ光もれを防止し、光の取り出し効率を改善した発光素子およびこれを用いた表示装置およびこれらの製造方法を提供することにある。

【0014】

【課題を解決するための手段】本発明者らは前記課題を解決するために鋭意検討した結果、陽極と陰極間に発光層を含む一層又は複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子内あるいはこれに隣接して設けられた回折格子あるいはゾーンプレートと、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と前記回折格子の外部に設けられた

フィルター部からなり、発光層から発した光がフィルター部を通過することで発光層で発した光とは色調若しくは色度の異なる光として取り出されるようにすることで、高精細なパターニングが簡便な工程で実現可能でありかつ光もれ防止と光の取り出し効率を改善した発光素子およびこれを用いた表示装置およびこれらの製造方法を提供できることを見出した。

【0015】すなわち本発明はア〜ク記載の発光素子およびこれを用いた表示装置およびそれらの製造方法である。

【0016】ア：陽極と陰極間に発光層を含む一層又は複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子内あるいはこれに隣接して設けられた回折格子あるいはゾーンプレートと、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と前記回折格子の外部に設けられたフィルター部からなり、発光層から発した光がフィルター部を通過することで発光層で発した光とは色調若しくは色度の異なる光として取り出される事を特徴とする発光素子。

【0017】イ：同一画素を形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極若しくは陰極のうち、一方の電極が可視光域で透明であり光を取り出すことができ、もう一方の電極が可視光を反射する電極であり、この反射電極に回折格子あるいはゾーンプレートが形成されているア記載の発光素子。

【0018】ウ：同一画素を形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極若しくは陰極のうち、一方の電極が可視光域で透明であり光を取り出すことができ、もう一方の電極が可視光を反射する電極であり、透明電極側に回折格子あるいはゾーンプレートが形成されているア記載の発光素子。

【0019】エ：前記回折格子あるいはゾーンプレートの全体が光透過性を有することを特徴とするウ記載の発光素子。

【0020】オ：回折格子が二次元周期を持つことを特徴とするアないしエ記載の発光素子。

【0021】カ：光透過性基板の一方の面に電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートが形成され、他方の面にフィルター部が配置されることを特徴とするアないしオ記載の発光素子。

【0022】キ：電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートが基板上に形成され、基板に対して電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートと同じ側でこれらに直接接しない位置にフィルター部が配置されることを特徴とするアないしオ記載の発光素子。

【0023】ク：フィルター部が前記発光層から発した光を吸収し、吸収した光とは異なる波長の光を発する蛍光物質あるいはりん光物質を含むことを特徴とするアないしキ記載の発光素子。

【0024】ケ：フィルター部の光射出面に光を散乱させる機能を有する事を特徴とする、アないしク記載の発光素子。

【0025】コ：アないしケ記載の発光素子を複数並置したことを特徴とする表示装置。

【0026】サ：前記有機エレクトロルミネッセンス素子および前記回折格子あるいはゾーンプレートと、前記フィルター部を個別に作成した後、互いを貼り合わせることを特徴とするアないしケ記載の発光素子の製造方法。

【0027】シ：前記有機エレクトロルミネッセンス素子および前記回折格子あるいはゾーンプレートと、前記フィルター部を個別に作成した後、互いを貼り合わせることを特徴とするコ記載の表示装置の製造方法。

【0028】以下、本発明を詳細に説明する。

【0029】特許第2991183号に開示されている通り、有機EL素子と回折格子あるいはゾーンプレートを組み合わせることにより光の取り出し効率を向上させることができる。さらに本発明者らは検討の結果、有機EL素子の発光波長に対して適切な格子間隔を有する回折格子を用いることで取り出される光の射出角を数度以内に制限できることを見出した。

【0030】本発明の回折格子としては反射型、透過型のいずれでも用いることができる。反射型の回折格子を用いる場合、図2に示すような素子構造、即ち基板面上に反射型の回折格子を形成し陰極と兼用し、その上に有機層、透明電極による陽極を形成する構造を用いることができる。ここに用いる反射型の回折格子は、回折格子としての機能を有するものであれば如何なる形状のものでも構わない。矩形の断面を持つラミナリー型、あるいはテーパの付いた断面を持つ刃型格子を基板上に形成し、その上に陰極を形成し反射面を兼用してもよい。また、陰極を反射係数の異なる二種の陰極材料よりストライプ状に形成することも、あるいは陰極自身をストライプ状のパターンとして回折格子を形成することが可能である。

【0031】また透過型の回折格子を利用する場合は図3に示すように、基板に回折格子を形成した後、陽極、有機層、陰極の順に積層し素子を形成できる。この場合透過型回折格子は振幅型、位相型の何れでもかまわず、またその形状も如何なるものでも構わない。例えば位相型の場合、基板面上に溝を形成した後屈折率の異なる透明材料の層を形成しこれを平坦化した後、通常の方法により陽極、有機層、陰極の順に積層することができる。振幅型の場合は基板面上に光を透過しない材料を用いストライプを形成することも、また陽極自身をストライプとすることもできるが、この場合陽極材料自身は透明、不透明の何れでもよい。例えば陽極として金電極を用いこれをストライプ状に加工し、この上に有機層、陰極と形成し素子を作成することができる。

【0032】透過型の回折格子を用いた場合には、回折格子へ入射する光は透過光と反射光に分かれるが、反射光の出射角が小さくなり陰極による反射により再び小さい入射角で入射されるため、反射型と同様に最終的には素子外部に取り出すことができる。

【0033】回折格子の寸法としては、目的とするELED素子の光の波長域に対し取出し効率が向上し、取り出される光の出射角が数度以内となる範囲にある。格子間隔は目的とする波長の光学長の0.5倍程度が望ましい。

【0034】また、通常回折格子の場合はストライプに平行な方向に対しては回折効果が起らないためこの方向の光取出しを向上させ、光もれを抑制することができない。この点を改良するために二次元の回折格子が使用可能である。あるいは溝のパターンを同心円上に描いた回折格子もまた使用可能である。この場合、同心円上の溝の間隔は周期的であっても図4に示すようなゾーンプレートを形成する間隔規則に則っていてもよい。またこれらの形成法も前記回折格子の場合に準じ、基板の形状を加工する場合、電極自身でパターン化する場合の何れの方法も可能であり、溝の形状等も如何なるものも可能である。

【0035】こうして回折格子あるいはゾーンプレートにより、発光層からの光は出射角数度以内で取り出される。これにより、本発明のフィルター部は、電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートに直接接しない位置、すなわちこれらとの間に光透過性基板を挟んだ位置や基板の同じ側でこれらから離れた位置に配置しても、光もれが発生しない。光透過性基板を挟んだ位置に配置する場合、基板上に有機ELED素子が作成された後に別途作製したフィルター部を貼り付けるだけで済むため、プロセスが非常に簡便となる。基板に対して有機薄膜層、その他と同じ側の離れた位置に配置する場合には、フィルター部に封止部材の役割を兼ねさせることが可能であり、さらにプロセスを簡便にできる。またこの場合、フィルター部と電極、有機薄膜層および回折格子あるいはゾーンプレートの間は光透過性を有する媒質で満たされていてもよく、この媒質は気体、液体、固体のいずれであってもよい。

【0036】本発明のフィルター部は発光層から発した光が通過する際に、色調あるいは色度の異なる光に変換する機能を有するものであり、色材単体あるいは適切なバインダーに溶解または分散した状態のいずれの形態で形成されていてもよい。フィルター部に用いられる色材は、所望の波長域の吸収あるいは発光の得られるものであれば、どのような物でも用いる事ができる。例えば、フタロシアニンブルーやフタロシアニングリーンなどのフタロシアニン系色素、ジスアゾイエローなどのアゾ系色素、ジプロモアントアントロンなどの多環キノ系色素、ジオキサニバイオレットなどのジオキサニ系色素といった顔料の他、1,4-ビス(2-メチルスチリン)

ベンゼン、トランス-4,4'-ジフェニルスチルベン等のスチルベン系色素、7-ヒドロキシ-4-メチルクマリン、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチルキノリジノ(9,9a,1-g h)クマリン、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン、3-(2'-ベンズイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン等のクマリン系色素、2-(6-(ジエチルアミノ)-3-(ジエチルイミノ)-3H-キサンテン-9-イル)ベンゼンカルボン酸等のローダミン系色素、等のクマリン色素、ベーシックイエロー51、およびソルベントイエロー11、ソルベントイエロー116等のナフタルイミド色素、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン等のシアニン系色素、1-エチル-2-(4-(p-ジメチルアミノフェニル)-1,3-ブタジエニル)-ピリジウム-パークロレート等のピリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G等のローダミン系色素、などの他にオキサジン系色素、モノアゾ系色素、アントラキノン系色素といった染料も用いる事ができる。また上記有機系の色材の他、Fe₂O₃系顔料、CoO-Al₂O₃-TiO₂-Cr₂O₃系顔料、CoO-Al₂O₃系顔料といった無機系の色材も用いる事が出来る。また、前記色素を樹脂中にあらかじめ練りこんで顔料化したものを用いてもよい。また、これらの色素又は顔料は、必要に応じて、単独または二種以上を混合して使用することができる。一方、バインダーは、透明な材料が好ましい。例としては、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂(高分子)が挙げられる。なお、フィルター部のパターンニングのために、フォトリソグラフィ法が適用できる透明な感光性樹脂も使用可能である。例としては、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いてパターンニングする場合には、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマー、また、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いて印刷インキ化される。フィルター部の形成方法は特に限定されず、従来公知の真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)またはスパッタリング法、あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法、スクリーン印刷法等の塗布法などを用いることがで

きる。また本発明のフィルター部に封止部材の役割を兼ねさせる場合、フィルター部に窒化シリコンなどからなるガスバリア層を設けてもよい。

【0037】ここで、この有機エレクトロルミネッセンス素子に於ける電極としては、陽極は正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NESA）、金、銀、白金、銅等の金属又は酸化物、並びにこれらの混合物が適用できる。また陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金、並びにこれらの混合物等が使用できる。陽極及び陰極の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法や、塗布熱分解法などの公知の方法で形成することができる。

【0038】ここでこれらの電極は、陽極、陰極のうち何れかの電極が可視光の領域に於いて透明でもう一方が高反射率を有するものとする。また、これらの電極の厚さは電極として本来の機能を果たす厚さであれば特に限定されることはないが、好ましくは0.02 μm～2 μmの範囲にあることが望ましい。

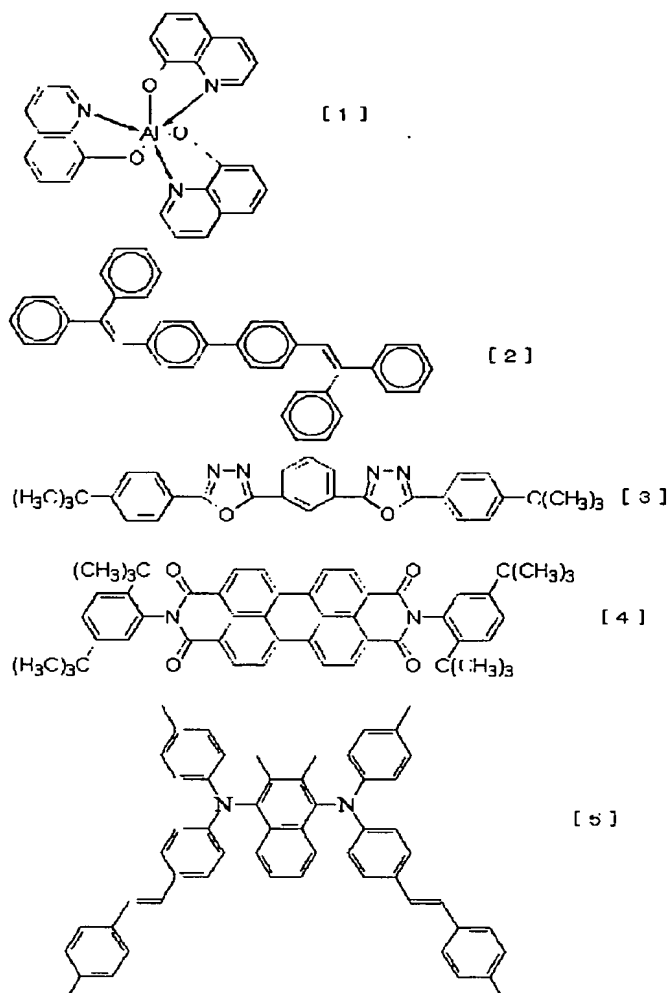
【0039】本発明における有機EL素子の素子構造は、上記電極間に有機層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、特にその構造に制約を受けない。例としては、①陽極、発光層、陰極、②陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、③陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは④陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。またこれらの有機層間及び有機層電極間に、電荷注入特性の向上や絶縁破壊を抑制あるいは発光効率を向上させる目的で、弗化リチウム、弗化マグネシウム、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等の無機の誘電体、絶縁体からなる薄膜層、あるいは有機層と電極材料又は金属との混合層、あるいはポリアニリン、ポリセチレン誘導体、ポリジアセチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体等の有機高分子薄膜を挿入しても構わない。

【0040】本発明に用いられる発光材料としては特に限定されず、通常発光材料として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、下記のトリス（8-キノリノール）アルミニウム錯体（Alq3）

[1] やビスジフェニルビニルビフェニル（BDPVB i）[2]、1,3-ビス（p-トープチルフェニル-1,3,4-オキサジアゾールイル）フェニル（OXD-7）[3]、N, N'-ビス（2,5-ジ-トープチルフェニル）ペリレンテトラカルボン酸ジイミド（BP-PC）[4]、1,4-ビス（p-トリル-p-メチルスチリルフェニル）ナフタレン[5]などである。

【0041】

【化1】

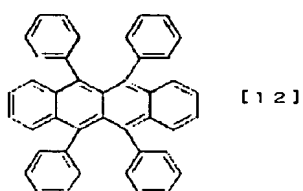
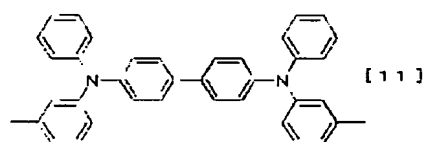
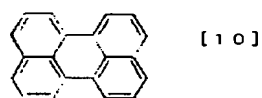
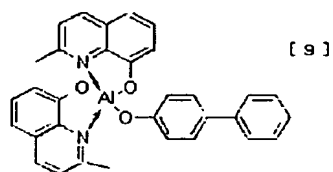
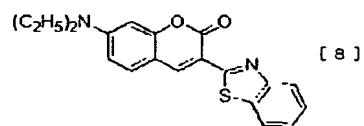
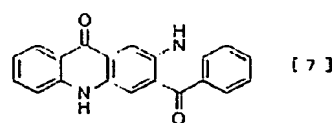
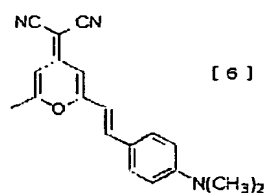


【0042】また、電荷輸送材料に蛍光材料をドーピングした層を発光材料として用いることもできる。例えば、前記のA1q3 [1] などのキノリノール金属錯体に4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM) [6]、2,3-キナクリドン [7] などのキナクリドン誘導体、3-(2'-ベンゾチアゾール)-7-ジエチルアミノクマリン [8] などのクマリン誘導体をドーピングした層、あるいは電子輸送材料ビス(2-メチル-8-ヒドロキシ

キノリン)-4-フェニルフェノール-アルミニウム錯体 [9] にペリレン [10] 等の縮合多環芳香族をドーピングした層、あるいは正孔輸送材料4,4'-ビス(m-トリルフェニルアミノ)ビフェニル(TPD) [11] にルブレン [12] 等をドーピングした層等を用いることができる。

【0043】

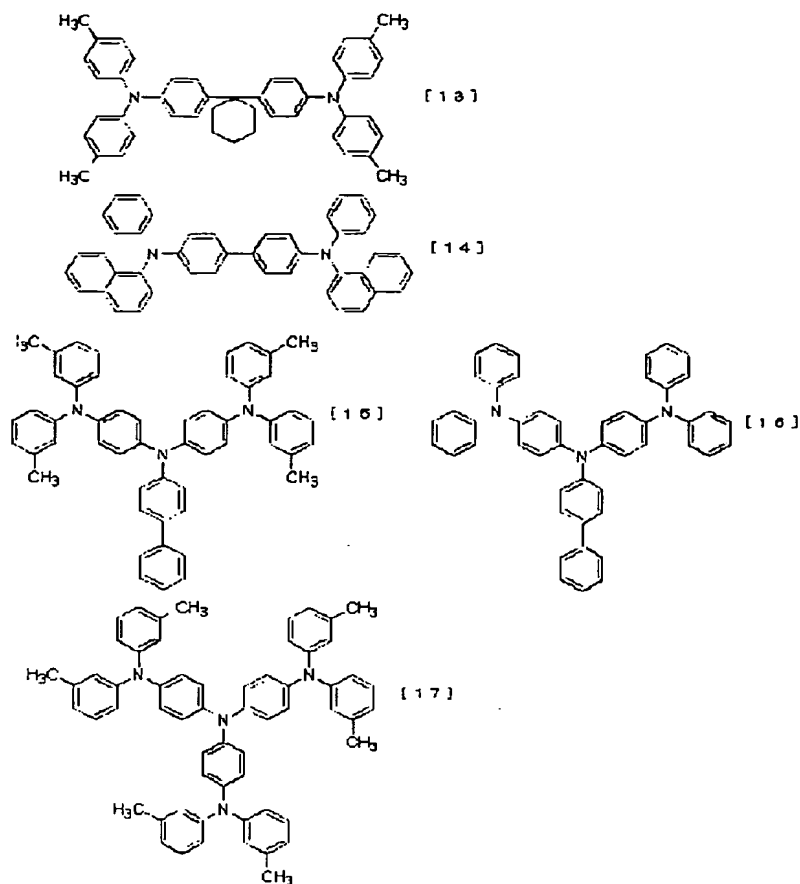
【化2】



【0044】本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送材料として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、ビス(ジ(p-トリル)アミノフェニル)-1,1-シクロヘキサン[13]、TPD[11]、N,N-ジフェニル-N-N-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-

4,4-ジアミン(NPB)[14]等のトリフェニルジアミン類や、スターバースト型分子([15]~[17]等)等が挙げられる。

【0045】
【化3】

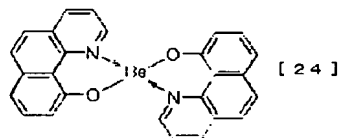
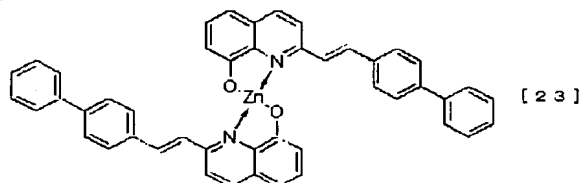
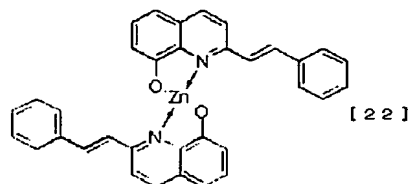
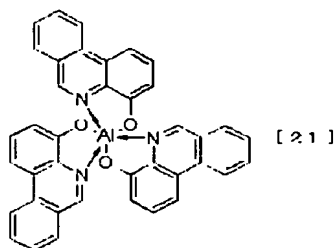
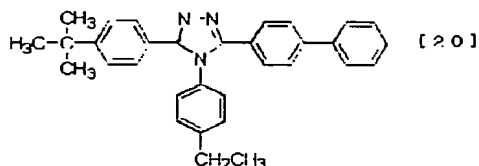
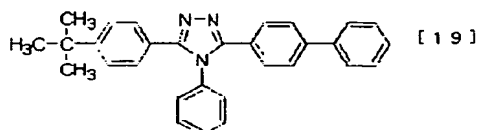
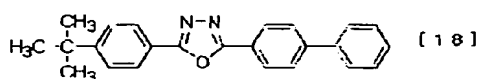


【0046】本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通常電子輸送材として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール (Bu-PBD) [18]、OXD-7 [3] 等のオキサジアゾール誘導体、トリア

ゾール誘導体 ([19]、[20] 等)、キノリノール系の金属錯体 ([1]、[9]、[21] ~ [24] 等) が挙げられる。

【0047】

【化4】



【0048】本発明の有機EL素子に於ける各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記の化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

【0049】本発明に於ける有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、通常は数10nmから1μmの範囲が好ましい。

【0050】

【発明の実施の形態】以下本発明を、実施例をもとに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。

【0051】[実施例1] 以下に実施例1の素子の作製手順について説明する。50mm×25mmのガラス基板(HOYA製、NA45、1.1mm厚)上に、G線用レジスト(クラリアント製、AZTFF650F5)

をスピコート法により塗布し、レーザー干渉露光法により280nmピッチのライン&スペースパターンを形成した。次にその基板に、反応性ガスエッチングを施し溝を形成した。その後、酸化チタンをターゲットとしてスパッタリング法により溝の上に高屈折率層を500nm形成後、通常の光学研磨を行いこの面を平坦化した。この上に陽極/正孔注入層/発光層/電子輸送層/陰極により構成される素子を形成した。光学研磨を行った面にITOをスパッタリングによって100nm積層した。この際、メタルマスクを用いITOを200μmライン、100μmギャップのストライプパターンになるように形成した。このときのシート抵抗は20Ω/□であった。有機層の形成は抵抗加熱式真空蒸着を用いて行った。真空槽の上部に設置した基板に対し、下方250mmの距離にモリブデン製のボートを設置、基板への入射角は38度の配置にし、基板回転は毎分30回転とした。圧力が 5×10^{-7} Torrに到達した時点で蒸着を開始、基板横に装着した水晶振動子式膜厚制御装置により蒸着速度を制御した。蒸着速度は毎秒0.15nmに設定して行った。正孔注入層として化合物[14]

を上記条件にて40nm形成したのち、発光層として〔2〕を70nm、電子輸送層として〔1〕を40nm順次同条件にて蒸着した。つぎに陰極としてマグネシウム-銀合金をそれぞれ独立のボートより同時に蒸着し陰極を形成した。このとき、マグネシウム対銀の蒸着速度がそれぞれ毎秒1.0nm、0.2nmとなるように上記膜厚制御装置にて制御し、膜厚は200nmとした。蒸着時にメタルマスクを用い、200μmライン、100μmギャップのストライプパターンをITOのストライプパターンと直交する方向に形成し陰極とした。このガラス基板の回折格子、電極、有機層を形成した面の対面にフィルター部材を圧着した。フィルター部材としては、図6に示すようにポリビニルアルコールフィルム中に埋め込まれる形で、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリンとポリ塩化ビニル樹脂の混合物(フィルター部A)、ローダミン含有顔料とポリ塩化ビニル樹脂の混合物(フィルター部B)、銅フタロシアニン含有光硬化型レジスト(フィルター部C)の3種が順に並んで200μmライン、100μmギャップのストライプを形成し、フィルター部Cの部分は図7に示すように基板と張り合わせる面の対面を粗面化したもの(図中の光拡散部8)を用いた。フィルター部材は各フィルター部がITOラインに重なる位置に固定した。こうして得られた素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ180、45、53cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0052】〔実施例2〕回折格子パターンを、275nmピッチで作成した以外は実施例1と全く同様に素子を作成した。この素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ240、60、70cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0053】〔実施例3〕実施例1と同様の手法によりガラス基板上に、280nmピッチのパターンを形成した。次にその基板に、反応性ガスエッチングを施し溝を形成した。この上に陰極としてマグネシウム-銀合金を実施例1と同様な条件で200nm蒸着し、その後、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、ITOを実施例1と同様の条件で順次積層した。このITO上に実施例1で用いたのと同じフィルター部材をスペーサーを挟んでフィルター部材とITOの間に0.1ミリの空隙ができるように張り合わせた。この際、各フィルター部がITOラインに重なる位置にあわせて密着させ固定した。この素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ160、40、47cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0054】〔実施例4〕回折格子パターンを、275nmピッチで作成した以外は実施例3と全く同様に素子を作成した。この素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ220、55、67cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0055】〔実施例5〕二次元格子として図5に示すパターンを使用する以外は、実施例2と全く同様に素子を作成した。この素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ280、70、80cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0056】〔実施例6〕二次元格子として図5に示すパターンを使用する以外は、実施例4と全く同様に素子を作成した。この素子に8Vの直流電圧を印加したところ、フィルター部A、B、Cからそれぞれ緑色、赤橙色、青色の発光がそれぞれ300、75、90cd/m²の輝度で得られ、光もれのない良好な表示が観測された。

【0057】

【発明の効果】以上説明したとおり、本発明の発光素子、これを用いた表示装置およびこれらの製造方法により、光の取り出し効率が改善された発光が得られ、高精細なバナーニングが簡便な工程で実現できかつ光もれの抑制された良好な表示が実現されることから、本発明の効果は大である。

【図面の簡単な説明】

【図1】通常素子の断面図である。

【図2】本発明に於ける反射型回折格子による素子構造の説明図である。

【図3】本発明に於ける透過型回折格子による素子構造の説明図である。

【図4】ゾーンプレートの説明図である。

【図5】実施例5、6に使用した二次元格子のパターンの図である。

【図6】本発明に用いるフィルター部材の拡大図である。

【図7】フィルター部7Cの断面図である。

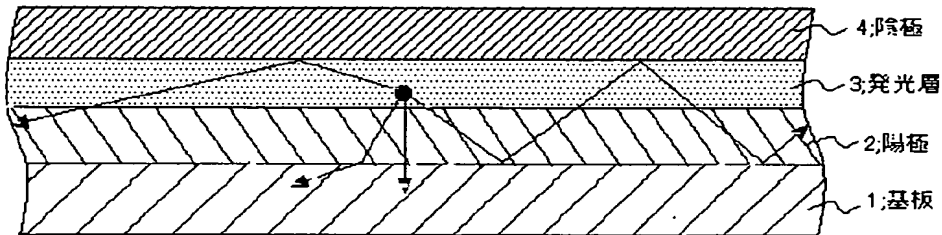
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 陰極
- 5 回折格子
- 6 フィルター部
- 7 フィルター部材
- 7A フィルター部A
- 7B フィルター部B

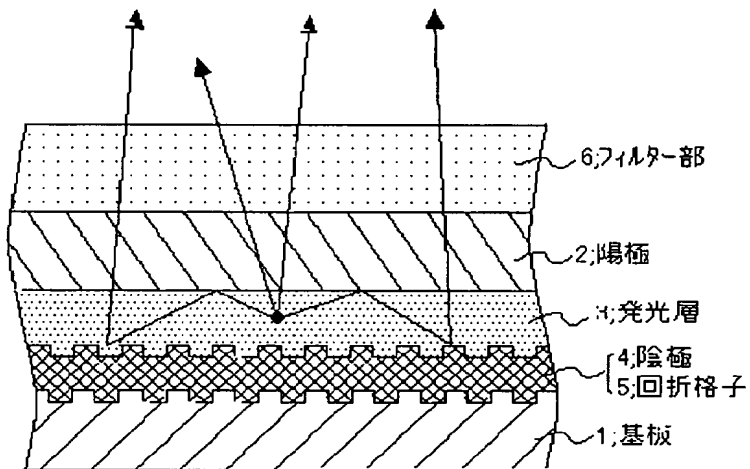
7C フィルター部C

8 光拡散部

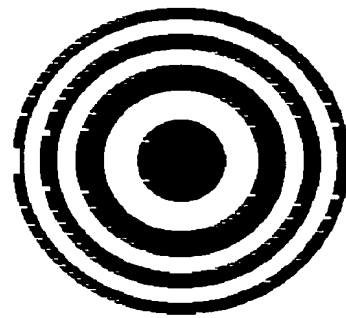
【図1】



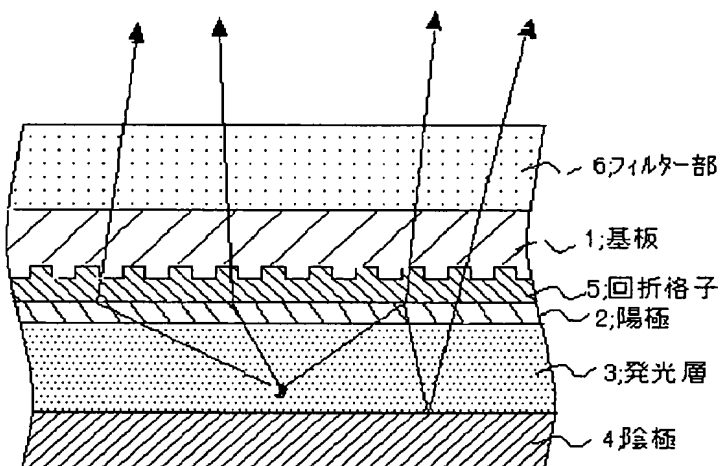
【図2】



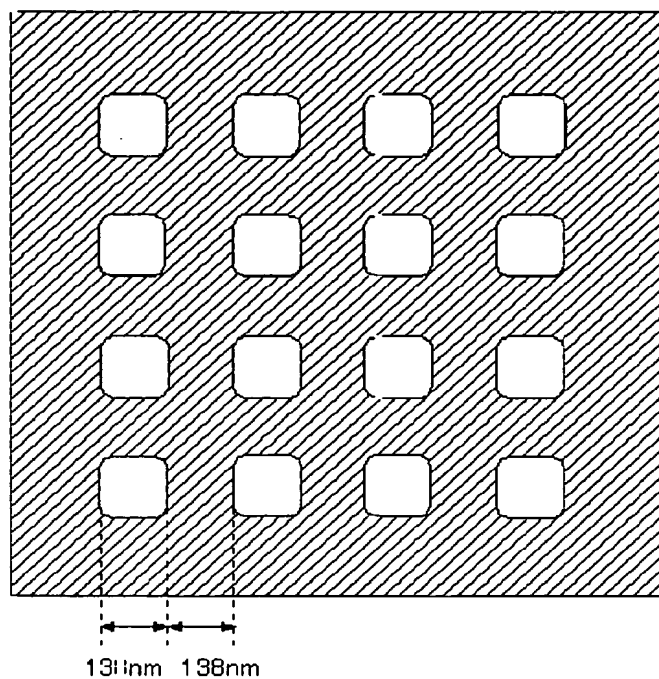
【図4】



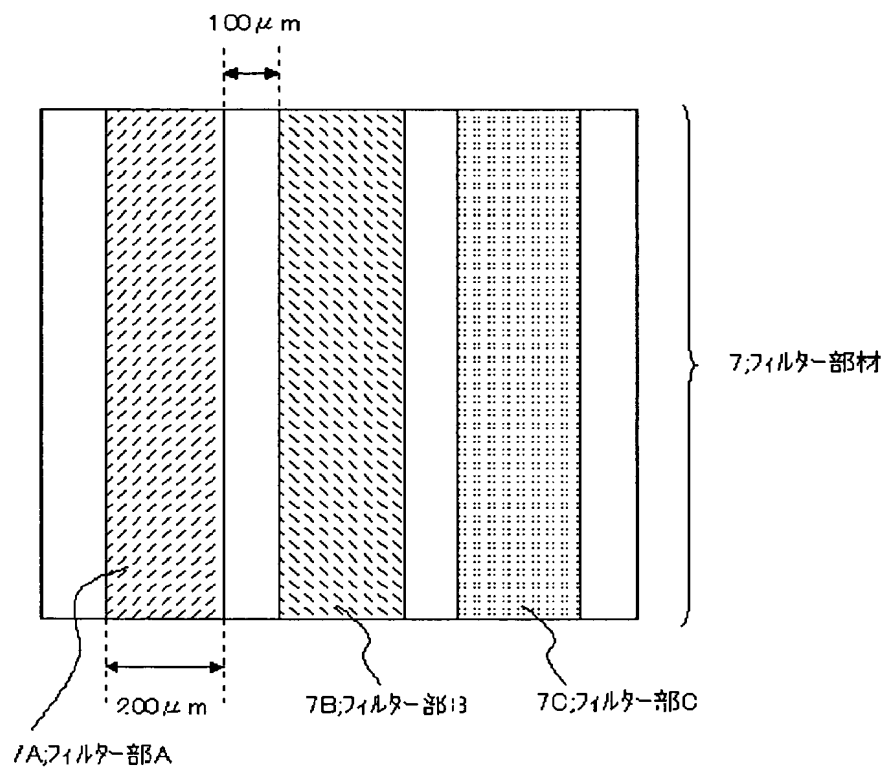
【図3】



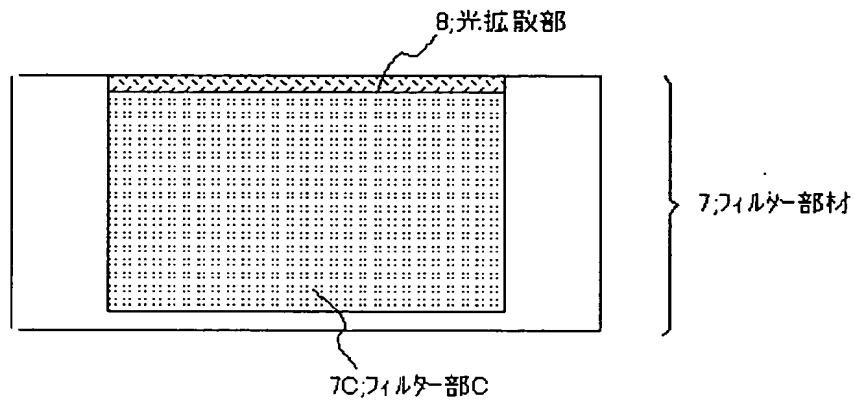
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	(参考)
H 0 5 B 33/12		H 0 5 B 33/12	E
33/14		33/14	A
33/24		33/24	
33/26		33/26	Z

(72)発明者 小田 敦	F ターム(参考)
東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株	3K007 AB03 BB06 CC01 DB03
式会社内	5C094 AA05 AA06 AA08 AA09 AA10
	AA43 AA48 BA27 BA32 CA19
	CA24 DA12 DA13 EA04 EA05
	EA06 EB02 ED03 ED13 FA01
	FA02 FB01 FB20 GB10
	5G435 AA02 AA03 AA04 AA17 BB05
	CC09 CC12 FF02 FF03 FF06
	GG12 HH06 KK05

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☒ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**